Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/002351

International filing date: 16 February 2005 (16.02.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP

Number: 2004-295778

Filing date: 08 October 2004 (08.10.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 21 April 2005 (21.04.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

25.02.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2004年10月 8日

出 願 番 号 Application Number:

特願2004-295778

パリ条約による外国への出願 に用いる優先権の主張の基礎 となる出願の国コードと出願 番号

在方 The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is JP2004-295778

出 願 人

石原産業株式会社

Applicant(s):



2005年 4月 8日

1) 1



【書類名】 特許願 【整理番号】 P2004053 特許庁長官殿 【あて先】 【国際特許分類】 C07C235/00 【発明者】 【住所又は居所】 中央 滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原産業株式会社 研究所内 小柳 徹 【氏名】 【発明者】 滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原産業株式会社 【住所又は居所】 中央 研究所内 森田 雅之 【氏名】 【発明者】 【住所又は居所】 滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原産業株式会社 中央 研究所内 中元 健一 【氏名】 【発明者】 滋賀県草津市西渋川二丁目3番1号 石原産業株式会社 【住所又は居所】 中央 研究所内 久松 彰弘 【氏名】 【特許出願人】 【識別番号】 000000354 【住所又は居所】 大阪府大阪市西区江戸堀一丁目3番15号 【氏名又は名称】 石原産業株式会社 田村 藤夫 【代表者】 【手数料の表示】 【予納台帳番号】 056823 【納付金額】 16,000円

【物件名】 特許請求の範囲 1

 【物件名】
 明細書 1

 【物件名】
 要約書 1

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

式(I):

【化1】

$$(\mathbb{R}^{1})\mathbb{m} = \mathbb{I}$$

$$(\mathbb{R}^{1})\mathbb{m} = \mathbb{$$

(式中、 R^1 はハロゲン又はアルキルであり、 R^2 及び R^3 は各々ハロゲン又は $-CF_3$ であり、AはYで置換されたアルキルであり、Yはハロアルキルチオ;ハロアルキルスルフィニル;ハロアルキルスルホニル;又はハロゲン若しくはアルキルで置換されてもよいシクロアルキルであり、mは1又は2であり、nは0又は1である)で表されるアントラニルアミド系化合物又はその塩。

【請求項2】

式(I):

化2】

$$\begin{array}{c|c} & & & & \\ & &$$

(式中、 R^1 はハロゲン又はアルキルであり、 R^2 及び R^3 は各々ハロゲン又は $-CF_3$ であり、AはYで置換されたアルキルであり、Yはハロアルキルチオ;ハロアルキルスルフィニル;ハロアルキルスルホニル;又はハロゲン若しくはアルキルで置換されてもよいシクロアルキルであり、mは1又は2であり、nは0又は1である)で表されるアントラニルアミド系化合物又はその塩の製造方法であって、(1)式(II):

【化3】

$$(\mathbb{R}^{1})\mathbb{m} \xrightarrow{\text{II}} \mathbb{N} \xrightarrow{\text{II}} \mathbb{A}$$

(式中、 R^1 、A及びmは前述の通りである)で表される化合物と、式(III):

Z—
$$\mathbb{Z}$$
 \mathbb{Z}
 \mathbb{Z}

(式中、 R^2 、 R^3 及びnは前述の通りであり、Zは塩素原子、-OH又は C_{1-4} アルコキシである)で表される化合物とを反応させるか、(2)式(IV):

【化5】

$$\mathbb{R}^{1})\mathbf{m} = \mathbb{R}^{2}$$

$$(IV)$$

(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、m及びnは前述の通りである)で表される化合物と、式(V): $A-NH_2$ (式中、Aは前述の通りである)で表される化合物とを反応させることを特徴とする方法。

【請求項3】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する有害生物防 除剤。

【請求項4】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する農園芸用有 害生物防除剤。

【請求項5】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する殺虫、殺ダニ又は殺線虫剤。

【請求項6】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する動物寄生生物防除剤。

【請求項7】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する動物外部寄 生性生物の防除剤。

【請求項8】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩を有効成分として含有する寄生生物起 因動物疾患の予防又は治療剤

【請求項9】

請求項1のアントラニルアミド系化合物又はその塩の有効量を施用して有害生物を防除する方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】アントラニルアミド系化合物、それらの製造方法及びそれらを含有する有 害生物防除剤

【技術分野】

[0001]

本発明は、有害生物防除剤の有効成分として有用な新規アントラニルアミド系化合物に関する。

【背景技術】

[0002]

WO03/2422には、アントラニルアミド系化合物が開示されている。しかしながら、それらは後記式(I)で表されるアントラニルアミド系化合物とは化学構造が異なる。

[0003]

【特許文献1】国際公開公報 WO03/24222

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0004]

長年にわたり、多数の有害生物防除剤が使用されているが、効力が不十分、有害生物が抵抗性を獲得しその使用が制限される等、種々の課題を有するものが少なくない。従って、かかる欠点の少ない新規な有害生物防除剤、例えば、農園芸分野で問題となる各種有害生物や、動物に寄生する有害生物を防除できる有害生物防除剤の開発が望まれている。

【課題を解決するための手段】

[0005]

本願発明者等は、より優れた有害生物防除剤を見出すべくアントラニルアミド系化合物につき種々検討した。その結果、新規なアントラニルアミド系化合物が、低薬量で有害生物に対して極めて高い防除効果を有することを見出し、本発明を完成した。

すなわち本発明は、式(I):

[0006]

【化1】

$$\mathbb{R}^{1})\mathbf{m} = \mathbb{R}^{2}$$

$$\mathbb{R}^{2}$$

$$\mathbb{R}^{3}$$

[0007]

(式中、 R^1 はハロゲン又はアルキルであり、 R^2 及び R^3 は各々ハロゲン又は $-CF_3$ であり、AはYで置換されたアルキルであり、Yはハロアルキルチオ;ハロアルキルスルフィニル;ハロアルキルスルホニル;又はハロゲン若しくはアルキルで置換されてもよいシクロアルキルであり、mは1又は2であり、nは0又は1である)で表されるアントラニルアミド系化合物又はその塩、それらの製造方法並びにそれらを含有する有害生物防除剤などに関する。

【発明の効果】

[0008]

前記式(I)の新規アントラニルアミド系化合物を有効成分とする有害生物防除剤は、 低薬量で有害生物に対して極めて高い防除効果を有する。

【発明を実施するための最良の形態】

[0009]

A中の置換基Yの置換数は、1又は2以上であってよく、2以上の場合、各置換基Yは同一でも相異なってもよい。また、置換基Yの置換位置はいずれの位置でもよい。

 R^1 、 R^2 、 R^3 又はY中のハロゲン又は置換基としてのハロゲンとしては、弗素、塩素、臭素又は沃素の各原子が挙げられる。置換基としてのハロゲンの数は1又は2以上であってよく、2以上の場合、各ハロゲンは同一でも相異なってもよい。また、ハロゲンの置換位置はいずれの位置でもよい。

[0010]

 R^1 、A又はY中のアルキル又はアルキル部分は直鎖又は分枝状のいずれでもよく、その具体例としては、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、ターシャリーブチル、ペンチル、ヘキシルのような C_1-6 のものなどが挙げられる。尚、置換基としてのアルキルの置換数は1又は2以上であってよく、2以上の場合、各アルキルは同一でも相異なってもよい。また、アルキルの置換位置はいずれの位置でもよい。

Y中のシクロアルキル又はシクロアルキル部分の具体例としては、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシルのような C_3-6 のものなどが挙げられる

[0011]

前記式(I)のアントラニルアミド系化合物の塩としては、農業上許容されるものであればあらゆるものが含まれるが、例えば、ナトリウム塩、カリウム塩のようなアルカリ金属塩;マグネシウム塩、カルシウム塩のようなアルカリ土類金属塩;ジメチルアンモニウム塩、トリエチルアンモニウム塩のようなアンモニウム塩;塩酸塩、過塩素酸塩、硫酸塩、硝酸塩のような無機酸塩;酢酸塩、メタンスルホン酸塩のような有機酸塩などが挙げられる。

[0012]

前記式(I)のアントラニルアミド系化合物には、光学異性体のような異性体が存在する場合があるが、本発明には各異性体及び異性体混合物の双方が含まれる。尚、本発明には、当該技術分野における技術常識の範囲内において、前記したもの以外の各種異性体も含まれる。また、異性体の種類によっては、前記式(I)とは異なる化学構造となる場合があるが、当業者であればそれらが異性体の関係にあることが十分認識できる為、本発明の範囲内であることは明らかである。

前記式(I)のアントラニルアミド系化合物又はその塩(以下本発明化合物と略す)は、以下の反応[A]~[B]と、通常の塩の製造方法に従って製造することができる。

[0013]

[A]
$$(R^1)m$$
 (II) $(R^1)m$ (III) $(R^2)m$ (III) $(R^3)m$ (III) $(R^3)m$ (III) $(R^3)m$ (III) $(R^3)m$ (III) $(R^3)m$ (III) $(R^3)m$ (III) (III)

[0014]

 R^1 、 R^2 、 R^3 、A、m及びnは前述の通りであり、Zは塩素原子、-OH又は C_1

$[0\ 0\ 1\ 5]$

反応〔A〕は、乙が塩素原子である場合、所望により溶媒の存在下で行うことができる。溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類;アセトニトリル、プロピオニトリル、N,Nージメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリックトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、Nーメチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒;酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピルのようなエステル類;アセトン、ジエチルケトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンのようなケトン類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

[0016]

反応 [A] は、Zが塩素原子である場合、通常-20~+60 \mathbb{C} 、望ましくは0~30 \mathbb{C} で行うことができ、その反応時間は、通常1~24時間程度、望ましくは2~12時間

程度とすることができる。

[0017]

反応〔A〕は、Zが一〇Hである場合、通常、脱水縮合剤及び溶媒の存在下で行うことができる。

脱水縮合剤としては、N,N' ージシクロヘキシルカルボジイミド、1,3 ージイソプロピルカルボジイミド、1-x チルー 3 ー (3 ージメチルアミノプロピル) カルボジイミド塩酸塩のようなカルボジイミド類;その他に、1,1' ーカルボニルービスー1 Hーイミダゾール、リン酸ジクロリドフェニルエステル、ジエチルホスホロシアニダート、1,3,5 ートリアザー2,4,6 ートリホスホリンー2,2,4,4,6,6 ーヘキサクロリド、シアヌリッククロリド、クロロギ酸イソブチル、クロロスルホニルイソシアネート、トリフルオロ酢酸無水物などが挙げられる。

[0018]

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類;アセトニトリル、プロピオニトリル、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリックトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒;酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピルのようなエステル類;アセトン、ジエチルケトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンのようなケトン類;ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサンのような脂肪族炭化水素類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

[0019]

反応〔A〕は、Zが-OHである場合、通常-20~+60 \mathbb{C} 、望ましくは0~30 \mathbb{C} で行うことができ、その反応時間は、通常0.5~24時間程度、望ましくは1~12時間程度とすることができる。

[0020]

反応[A]は、Zが C_{1-4} アルコキシである場合、通常、塩基及び溶媒の存在下で行うことができる。

塩基としては、水素化ナトリウム、水素化カリウムのようなアルカリ金属水素化物;ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、カリウム第 3 級ブトキシドのようなアルカリ金属アルコキシド;トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリイソプロピルアミン、ジイソプロピルエチルアミン、ピリジン、4-ジメチルアミノピリジン、2,6-ジメチルピリジン、4-ピロリジノピリジン、N,N-ジメチルアニリン、N,N-ジメチルアニリン、N,N-ジエチルアニリン、N-エチルN-メチルアニリン、N,N-ジエチルアニリン、N-エチルN-メチルアニリン、N,N-ジエチルアニリン、N,N-0、N0、N-0、N0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0、N-0 、N-0 、

[0021]

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類;アセトニトリル、プロピオニトリル、N,Nージメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリックトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、Nーメチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒;メタノール、エタノール、プロパノール、ノルマルブタノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

[0022]

反応 [A] は、Zが C_1 – 4 アルコキシである場合、通常 $0 \sim 120$ \mathbb{C} 、望ましくは $20 \sim 80$ \mathbb{C} で行うことができ、その反応時間は、通常 $0.5 \sim 24$ 時間程度、望ましくは $1 \sim 12$ 時間程度とすることができる。

[0023]

前記式(II)又は式(III)の化合物は、それぞれ公知化合物であるか、或は公知資料に準じて製造することができる。例えば、式(II)の化合物は、Synthesis、1980年、505頁に記載された方法又はそれに準じて製造することができ、式(III)の化合物は、WO03/2422中のスキーム9~22に記載された方法又はそれに準じて製造することができる。

【0024】 【化3】

$$(R^{1})m \longrightarrow (R^{2})m \longrightarrow (R^{3})m \longrightarrow (R^{3})m$$

[0025]

 R^1 、 R^2 、 R^3 、A、m及びnは前述の通りである。

反応〔B〕は、通常、溶媒の存在下で行うことができる。

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類;アセトニトリル、プロピオニトリル、N,Nージメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリックトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、Nーメチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

[0026]

反応 [B] は、通常 $0 \sim 1$ 2 0 \mathbb{C} 、望ましくは 2 $0 \sim 8$ 0 \mathbb{C} で行うことができ、その反応時間は、通常 $0.5 \sim 2$ 4 時間程度、望ましくは $1 \sim 1$ 2 時間程度とすることができる

前記式 (IV) の化合物は、公知化合物であるか、或は公知資料に準じて製造することができる。例えば、式 (IV) の化合物は、0rg. Prep. Proceed. Int.、1993年、25巻、585 頁に記載された方法、WO03/2422中のスキーム8~10に記載された方法又は

それらに準じて製造することができる。

前記式(V)の化合物には新規化合物が含まれる。当該化合物はGabriel法にて製造可能であるが、例えば以下の反応[C]に従って製造することができる。

[0027]

[0028]

Aは前述の通りであり、Tはハロゲン、 $-OSO_2$ G(Gはスルホン酸エステル残基)又は-OHであり、Tがハロゲン又は $-OSO_2$ Gのとき、Mはナトリウム又はカリウムであり、Tが-OHのとき、Mは水素原子である。前記スルホン酸エステル残基としては、例えばメチル、エチルのような C_1 - 6 のアルキル; C_1 - 6 のアルキルで置換されてもよいフェニルなどが挙げられる。

[0029]

反応〔C〕の第1工程は、Tがハロゲン又は $-OSO_2G$ であり、且OMがナトリウム又はカリウムである場合、通常溶媒の存在下で行うことができる。

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類;アセトニトリル、プロピオニトリル、N,Nージメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、ヘキサメチルホスホリックトリアミド、スルホラン、ジメチルアセトアミド、Nーメチルピロリドンのような極性非プロトン性溶媒;メタノール、エタノール、プロパノール、ノルマルブタノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

[0030]

反応〔C〕の第1工程は、Tがハロゲン又は $-OSO_2$ Gであり、且つMがナトリウム又はカリウムである場合、通常 $0\sim1$ 5 0 \mathbb{C} 、望ましくは 3 $0\sim1$ 1 0 \mathbb{C} で行うことができ、その反応時間は、通常 $0.5\sim2$ 4 時間程度、望ましくは $1\sim1$ 2 時間程度とすることができる。

[0031]

反応〔C〕の第1工程は、Tが一OHであり、且つMが水素原子である場合、通常、光延法に従って行うことができるが、例えば、溶媒の存在下、ジアルキルアゾジカルボキシレート及びトリフェニルホスフィンを用いて行うことができる。前記ジアルキルアゾジカルボキシレートとトリフェニルホスフィンは、通常、式(VI)の化合物に対し、それぞれ等モル程度用いることができる。前記ジアルキルアゾジカルボキシレートとしては、例えばジエチルアゾジカルボキシレート、ジイソプロピルアゾジカルボキシレートなどが挙げられる。

[0032]

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素、ジクロロエタン、トリクロロエタン、ジクロロエチレンのようなハロゲン化炭化水素類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類などから1種

又は2種以上を適宜選択することができる。

[0033]

反応 [C] の第1工程は、Tが-OHであり、且OMが水素原子である場合、通常O \sim 80 \mathbb{C} 、望ましくは $20\sim60$ \mathbb{C} で行うことができ、その反応時間は、通常 $O.5\sim24$ 時間程度、望ましくは $1\sim16$ 時間程度とすることができる。

[0034]

反応〔C〕の第2工程は、通常、溶媒の存在下、式(VIII)の化合物を、ヒドラジンを 用いて分解することにより行うことができる。前記ヒドラジンは、通常、式(VIII)の化 合物に対し、等モル程度用いることができる。

[0035]

溶媒としては、反応に不活性な溶媒であればいずれのものでもよく、例えば、ジエチルエーテル、ブチルエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメトキシエタンのようなエーテル類;ベンゼン、トルエン、キシレンのような芳香族炭化水素類;メタノール、エタノール、プロパノール、ノルマルブタノール、ターシャリーブタノールのようなアルコール類などから1種又は2種以上を適宜選択することができる。

[0036]

反応〔C〕の第2工程は、通常 $0\sim140$ C、望ましくは $30\sim100$ Cで行うことができ、その反応時間は、通常 $0.5\sim24$ 時間程度、望ましくは $2\sim12$ 時間程度とすることができる。

[0037]

本発明化合物を含有する有害生物防除剤の望ましい態様について以下に記述する。本発明化合物を含有する有害生物防除剤は、例えば農園芸分野で問題となる各種有害生物の防除剤、即ち農園芸用有害生物防除剤や、動物に寄生する有害生物の防除剤、即ち動物寄生生物防除剤として特に有用である。

[0038]

農園芸用有害生物防除剤としては、例えば、殺虫、殺ダニ、殺線虫、殺土壤害虫剤とし て有用であるが、具体的には、ナミハダニ、ニセナミハダニ、カンザワハダニ、ミカンハ ダニ、リンゴハダニ、チャノホコリダニ、ミカンサビダニ、ネダニなどのような植物寄生 性ダニ類;コナガ、ヨトウムシ、ハスモンヨトウ、コドリンガ、ボールワーム、タバコバ ッドワーム、マイマイガ、コブノメイガ、チャノコカクモンハマキ、リンゴコカクモンハ マキ、モモシンクイガ、ナシヒメシンクイ、タマナヤガ、カブラヤガ、コロラドハムシ、 ウリハムシ、ボールウィービル、アブラムシ類、ウンカ類、ヨコバイ類、カイガラムシ類 、カメムシ類、コナジラミ類、アザミウマ類、バッタ類、ハナバエ類、コガネムシ類、ア リ類、ハモグリバエ類などのような農業害虫類;ネコブセンチュウ類、シストセンチュウ 類、ネグサレセンチュウ類、イネシンガレセンチュウ、イチゴメセンチュウ、マツノザイ センチュウなどのような植物寄生性線虫類;ナメクジ、マイマイなどのような腹足類;ダ ンゴムシ、ワラジムシのような等脚類などのような土壌害虫類;イエダニ、イエバエ、ア カイエカ、ゴキブリ類などのような衛生害虫類;バクガ、アズキゾウムシ、コクヌストモ ドキ、ゴミムシダマシ類などのような貯穀害虫類;イガ、ヒメカツオブシムシ、シロアリ 類などのような衣類、家屋害虫類;ケナガコナダニ、コナヒョウダニ、ミナミツメダニな どのような屋内塵性ダニ類;などの防除に有効である。なかでも、本発明化合物を含有す る農園芸用有害生物防除剤は、植物寄生性ダニ類、農業害虫類、植物寄生性線虫類などの 防除に特に有効である。また、本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、有機 リン剤、カーバメート剤、合成ビレスロイド剤などの薬剤に対する各種抵抗性害虫の防除 にも有効である。さらに本発明化合物は、優れた浸透移行性を有していることから、本発 明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤を土壌に処理することによって土壌有害昆虫 類、ダニ類、線虫類、腹脚類、等脚類の防除と同時に茎葉部の害虫類をも防除することが できる。

[0039]

本発明化合物を含有する有害生物防除剤の別の望ましい態様としては、前記した植物寄出証特2005-3031499

生性ダニ類、農業害虫類、植物寄生性線虫類、腹足類、土壌害虫類などを総合的に防除する農園芸用有害生物防除剤が挙げられる。

[0040]

本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、通常該化合物と各種農業上の補助 剤とを混合して粉剤、粒剤、顆粒水和剤、水和剤、水性懸濁剤、油性懸濁剤、水溶剤、乳 剤、液剤、ペースト剤、エアゾール剤、微量散布剤などの種々の形態に製剤して使用され るが、本発明の目的に適合するかぎり、通常の当該分野で用いられているあらゆる製剤形 態にすることができる。製剤に使用する補助剤としては、珪藻土、消石灰、炭酸カルシウ ム、タルク、ホワイトカーボン、カオリン、ベントナイト、カオリナイト及びセリサイト の混合物、クレー、炭酸ナトリウム、重曹、芒硝、ゼオライト、澱粉などの固型担体;水 、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、ジオキサン、アセトン、イソホロン、メチル イソブチルケトン、クロロベンゼン、シクロヘキサン、ジメチルスルホキシド、N,N-ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン、アルコー ルなどの溶剤;脂肪酸塩、安息香酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、ジアルキルスルホコ ハク酸塩、ポリカルボン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、アルキル硫酸塩、アルキルアリ ール硫酸塩、アルキルジグリコールエーテル硫酸塩、アルコール硫酸エステル塩、アルキ ルスルホン酸塩、アルキルアリールスルホン酸塩、アリールスルホン酸塩、リグニンスル ホン酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、ポリスチレンスルホン酸塩、ア ルキルリン酸エステル塩、アルキルアリールリン酸塩、スチリルアリールリン酸塩、ポリ オキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルアリール エーテル硫酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル硫酸エステル塩、ポリオ キシエチレンアルキルエーテルリン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルアリールリン酸エ ステル塩、ナフタレンスルホン酸ホルマリン縮合物の塩のような陰イオン系の界面活性剤 や展着剤;ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、脂肪酸ポリグリセラ イド、脂肪酸アルコールポリグリコールエーテル、アセチレングリコール、アセチレンア ルコール、オキシアルキレンブロックポリマー、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、 ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレンスチリルアリールエ ーテル、ポリオキシエチレングリコールアルキルエーテル、ポリエチレングリコール、ポ リオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリ オキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキ シプロピレン脂肪酸エステルのような非イオン系の界面活性剤や展着剤;オリーブ油、カ ポック油、ひまし油、シュロ油、椿油、ヤシ油、ごま油、トウモロコシ油、米ぬか油、落 花生油、綿実油、大豆油、菜種油、亜麻仁油、きり油、液状パラフィンなどの植物油や鉱 物油などが挙げられる。これら補助剤の各成分は、本発明の目的から逸脱しないかぎり、 1種又は2種以上を適宜選択して使用することができる。また、前記した補助剤以外にも 当該分野で知られたものの中から適宜選んで使用することもでき、例えば、増量剤、増粘 剤、沈降防止剤、凍結防止剤、分散安定剤、薬害軽減剤、防黴剤など通常使用される各種 補助剤も使用することができる。本発明化合物と各種補助剤との配合割合は0.001:99.99 9~95:5、望ましくは0.005:99.995~90:10である。これら製剤の実際の使用に際して は、そのまま使用するか、または水等の希釈剤で所定濃度に希釈し、必要に応じて各種展 着剤(界面活性剤、植物油、鉱物油など)を添加して使用することができる。

[0041]

本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤の施用は、気象条件、製剤形態、施用時期、施用場所、病害虫の種類や発生状況などの相違により一概に規定できないが、一般に0.05~800000ppm、望ましくは0.5~500000ppmの有効成分濃度で行ない、その単位面積あたりの施用量は、1へクタール当り本発明化合物が0.05~50000g、望ましくは1~30000gである。また、本発明化合物を含有する有害生物防除剤の別の望ましい態様である農園芸用の有害生物防除剤の施用は、前記有害生物防除剤の施用に準じて行われる。本発明には、このような施用方法による有害生物の防除方法、特に植物寄生性ダニ類、農業害虫類、植物寄生性線虫類の防除方法も含まれる。

[0042]

本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤の種々の製剤、またはその希釈物の施 用は、通常一般に行なわれている施用方法すなわち、散布(例えば散布、噴霧、ミスティ ング、アトマイジング、散粒、水面施用等)、土壌施用(混入、灌注等)、表面施用(塗 布、粉衣、被覆等)、浸漬毒餌等により行うことができる。また、家畜に対して前記有効 成分を飼料に混合して与え、その排泄物での有害虫、特に有害昆虫の発生及び生育を阻害 することも可能である。またいわゆる超高濃度少量散布法(ultra low volume)により施用 することもできる。この方法においては、活性成分を100%含有することが可能である。

[0043]

また、本発明化合物を含有する農園芸用有害生物防除剤は、他の農薬、肥料、薬害軽減 剤などと混用或は併用することができ、この場合に一層優れた効果、作用性を示すことが ある。他の農薬としては、除草剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺土壌害虫剤、殺菌剤 、抗ウィルス剤、誘引剤、抗生物質、植物ホルモン、植物成長調整剤などが挙げられる。 特に、本発明化合物と他の農薬の有効成分化合物の1種又は2種以上とを混用或は併用し た混合有害生物防除組成物は、適用範囲、薬剤処理の時期、防除活性等を好ましい方向へ 改良することが可能である。尚、本発明化合物と他の農薬の有効成分化合物は各々別々に 製剤したものを散布時に混合して使用しても、両者を一緒に製剤して使用してもよい。本 発明には、このような混合有害生物防除組成物も含まれる。

[0044]

本発明化合物と他の農薬の有効成分化合物との混合比は、気象条件、製剤形態、施用時 期、施用場所、病害虫の種類や発生状況などの相違により一概に規定できないが、一般に $1:300 \sim 300:1$ 、望ましくは $1:100 \sim 100:1$ である。また、施用適量は1 ヘクタール当り の総有効成分化合物量として $0.1\sim50000$ g、望ましくは $1\sim30000$ gである。本発明には、こ のような混合有害生物防除組成物の施用方法による有害生物の防除方法も含まれる。

[0045]

上記他の農薬中の、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤或いは殺土壌害虫剤、すなわち害虫防 除剤の有効成分化合物 (一般名;一部申請中を含む) としては、例えばプロフェノホス(P rofenofos)、ジクロルボス(Dichlorvos)、フェナミホス(Fenamiphos)、フェニトロチオン (Fenitrothion)、EPN、ダイアジノン(Diazinon)、クロルピリホスメチル(Chlorpyrifo s-methyl)、アセフェート(Acephate)、プロチオホス(Prothiofos)、ホスチアゼート(Fost hiazate)、ホスホカルブ(Phosphocarb)、カズサホス(Cadusafos)、ジスルホトン(Dislfot on)、クロルピリホス(Chlorpyrifos)、デメトン-S-メチル (Demeton-S-methyl) 、ジメ トエート(Dimethoate)、メタミドホス(Methamidophos)のような有機リン酸エステル 系化合物:

カルバリル(Carbaryl)、プロポキスル(Propoxur)、アルジカルブ(Aldicarb)、カルボフ ラン(Carbofuran)、チオジカルブ(Thiodicarb)、メソミル(Methomyl)、オキサミル(Oxamy 1)、エチオフェンカルブ(Ethiofencarb)、ピリミカルブ(Pirimicarb)、フェノブカルブ(F enobucarb)、カルボスルファン(Carbosulfan)、ベンフラカルブ(Benfuracarb)のようなカ ーバメート系化合物;

カルタップ(Cartap)、チオシクラム(Thiocyclam)、ベンスルタップ (Bensultap) のよ うなネライストキシン誘導体;

ジコホル(Dicofol)、テトラジホン(Tetradifon)のような有機塩素系化合物;

酸化フェンブタスズ(Fenbutatin Oxide)のような有機金属系化合物;

フェンバレレート(Fenvalerate)、ペルメトリン(Permethrin)、シペルメトリン(Cyperm ethrin)、デルタメトリン(Deltamethrin)、シハロトリン(Cyhalothrin)、テフルトリン(T efluthrin)、エトフェンプロックス(Ethofenprox)、フェンプロパトリン (Fenpropathrin)、ビフェントリン(Bifenthrin)のようなピレスロイド系化合物;

ジフルベンズロン(Diflubenzuron)、クロルフルアズロン(Chlorfluazuron)、テフルベ ンズロン(Teflubenzuron)、フルフェノクスロン(Flufenoxuron)、ルフェヌロン(Lufenur on)、ノバルロン (Novaluron) のようなベンゾイルウレア系化合物;

メトプレン(Methoprene)、ピリプロキシフェン(Pyriproxyfen)、フェノキシカルブ (Fe noxycarb) のような幼若ホルモン様化合物;

ピリダベン(Pyridaben)のようなピリダジノン系化合物;

フェンピロキシメート(Fenpyroximate)、フィプロニル(Fipronil)、テブフェンピラド(Tebufenpyrad)、エチピロール(Ethiprole)、トルフェンピラド(Tolfenpyrad)、アセトプロール(Acetoprole) のようなピラゾール系化合物;

イミダクロプリド(Imidacloprid)、ニテンピラム(Nitenpyram)、アセタミプリド(Aceta miprid)、チアクロプリド(Thiacloprid)、チアメトキサム(Thiamethoxam)、クロチアニジン(Clothianidin)、ジノテフラン (Dinotefuran) などのネオニコチノイド;

テブフェノジド(Tebufenozide)、メトキシフェノジド(Methoxyfenozide)、クロマフェノジド(Chromafenozide)などのヒドラジン系化合物;

ジニトロ系化合物、有機硫黄化合物、尿素系化合物、トリアジン系化合物、ヒドラゾン 系化合物また、その他の化合物として、フロニカミド(Flonicamid)、ブプロフェジン(Bup rofezin)、ヘキシチアゾクス(Hexythiazox)、アミトラズ(Amitraz)、クロルジメホルム(C hlordimeform)、シラフルオフェン(Silafluofen)、トリアザメイト(Triazamate)、ピメト ロジン(Pymetrozine)、ピリミジフェン(Pyrimidifen)、クロルフェナピル(Chlorfenapyr) 、インドキサカルブ(Indoxacarb)、アセキノシル(Acequinocyl)、エトキサゾール(Etoxaz ole)、シロマジン(Cyromazine)、1,3-ジクロロプロペン(1,3-dichloropropene)、ジア フェンチウロン (Diafenthiuron) 、ベンクロチアズ (Benclothiaz) 、フルフェンリム (Flufenerim)、ピリダリル(Pyridalyl)、スピロジクロフェン(Spirodiclofen)、ビフ ェナゼート (Bifenazate) 、スピロメシフェン (Spiromesifen) 、プロパルギット (Prop argite)、クロフェンテジン(Clofentezine)、エトキサゾール(Etoxazole)、フルア クリピリム(Fluacrypyrim)のような化合物;などが挙げられる。更に、BT剤、昆虫病 原ウイルス剤、昆虫病原糸状菌剤、線虫病原糸状菌剤などのような微生物農薬、アベルメ クチン(Avermectin)、エマメクチンベンゾエート(Emamectin-Benzoate)、ミルベメクチン (Milbemectin)、スピノサッド(Spinosad)、イベルメクチン (Ivermectin) のような抗 生物質などと、混用、併用することもできる。

[0046]

上記他の農薬中の、殺菌剤の有効成分化合物 (一般名; 一部申請中を含む) としては、例えば、メパニピリム (Mepanipyrim)、ピリメサニル (Pyrimethanil)、シプロジニル (Cyprodinil) のようなピリミジナミン系化合物;

トリアジメホン(Triadimefon)、ビテルタノール(Bitertanol)、トリフルミゾール(Triflumizole)、エタコナゾール(Etaconazole)、プロピコナゾール(Propiconazole)、ペンコナゾール(Penconazole)、フルシラゾール(Flusilazole)、マイクロブタニル(Myclobutanil)、シプロコナゾール(Cyproconazole)、ターブコナゾール(Terbuconazole)、ヘキサコナゾール(Hexaconazole)、ファーコナゾールシス(Furconazole-cis)、プロクロラズ(Prochloraz)、メトコナゾール(Metconazole)、エポキシコナゾール(Epoxiconazole)、テトラコナゾール(Tetraconazole)、オキスポコナゾール(Oxpoconazole)、シプコナゾール(Sipconazole)のようなアゾール系化合物;

キノメチオネート(Quinomethionate)のようなキノキサリン系化合物;

マンネブ(Maneb)、ジネブ(Zineb)、マンゼブ(Mancozeb)、ポリカーバメート(Polycarba mate)、プロピネブ(Propineb)のようなジチオカーバメート系化合物;

フサライド(Fthalide)、クロロタロニル(Chlorothalonil)、キントゼン(Quintozene)のような有機塩素系化合物;

ベノミル(Benomyl)、チオファネートメチル(Thiophanate-Methyl)、カーベンダジム(Carbendazim)、シアゾファミド(Cyazofamid)のようなイミダゾール系化合物;

フルアジナム(Fluazinam)のようなピリジナミン系化合物;

シモキサニル(Cymoxanil)のようなシアノアセトアミド系化合物;

メタラキシル(Metalaxyl)、オキサジキシル(Oxadixyl)、オフレース(Ofurace)、ベナラキシル(Benalaxyl)、フララキシル(Furalaxyl)、シプロフラム(Cyprofuram)のようなフェ

ニルアミド系化合物;

ジクロフルアニド(Dichlofluanid)のようなスルフェン酸系化合物;

水酸化第二銅(Cupric hydroxide)、有機銅(Oxine Copper)のような銅系化合物;

ヒドロキシイソキサゾール(Hydroxyisoxazole)のようなイソキサゾール系化合物;

ホセチルアルミニウム(Fosetyl-Al)、トルクロホスメチル(Tolclofos-Methyl)、S-ベンジル O, O-ジイソプロピルホスホロチオエート、<math>O-エチル S, S-ジフェニルホスホロジチオエート、アルミニウムエチルハイドロゲンホスホネートのような有機リン系化合物;

キャプタン(Captan)、キャプタホル(Captafol)、フォルペット(Folpet)のようなN-Nロゲノチオアルキル系化合物;

プロシミドン(Procymidone)、イプロジオン(Iprodione)、ビンクロゾリン(Vinclozolin)のようなジカルボキシイミド系化合物;

フルトラニル(Flutolanil)、メプロニル(Mepronil)、ゾキサミド(Zoxamide)のようなベンズアニリド系化合物;

トリホリン(Triforine)のようなピペラジン系化合物;

ピリフェノックス(Pyrifenox)のようなピリジン系化合物;

フェナリモル(Fenarimol)、フルトリアフォル(Flutriafol)のようなカルビノール系化合物;

フェンプロピジン(Fenpropidine)のようなピペリジン系化合物;

フェンプロピモルフ(Fenpropimorph)のようなモルフォリン系化合物;

フェンチンヒドロキシド(Fentin Hydroxide)、フェンチンアセテート(Fentin Acetate) のような有機スズ系化合物:

ペンシキュロン(Pencycuron)のような尿素系化合物;

ジメトモルフ(Dimethomorph)のようなシンナミック酸系化合物;

ジエトフェンカルブ(Diethofencarb)のようなフェニルカーバメート系化合物;

フルジオキソニル(Fludioxonil)、フェンピクロニル(Fenpiclonil)のようなシアノピロール系化合物;

アゾキシストロビン(Azoxystrobin)、クレソキシムメチル(Kresoxim-Methyl)、メトミノフェン(Metominofen)、トリフロキシストロビン(Trifloxystrobin)、ピコキシストロビン(Picoxystrobin)、ピラクロストロビン (Pyraclostrobin) のようなストロビルリン系化合物;

ファモキサドン(Famoxadone)のようなオキサゾリジノン系化合物;

エタボキサム(Ethaboxam)のようなチアゾールカルボキサミド系化合物;

シルチオファム(Silthiopham)のようなシリルアミド系化合物;

イプロバリカルブ(Iprovalicarb)のようなアミノアシッドアミドカーバメート系化合物:

フェナミドン(Fenamidone)のようなイミダゾリジン系化合物:

フェンヘキサミド(Fenhexamid)のようなハイドロキシアニリド系化合物;

フルスルファミド(Flusulfamide)のようなベンゼンスルホンアミド系化合物;

アトラキノン系化合物;クロトン酸系化合物;抗生物質またその他の化合物として、イソプロチオラン(Isoprothiolane)、トリシクラゾール(Tricyclazole)、ピロキロン(Pyroquilon)、ジクロメジン(Diclomezine)、プロベナゾール(Probenazole)、キノキシフェン(Quinoxyfen)、プロパモカルブ塩酸塩(Propamocarb Hydrochloride)、スピロキサミン(Spiroxamine)、クロロピクリン(Chloropicrin)、ダゾメット(Dazomet)、メタムナトリウム塩(Metam-sodium);などが挙げられる。

[0047]

その他、本発明化合物と混用或いは併用することが可能な農薬としては、例えは、Farm Chemicals Handbook (2000年版) に記載されているような除草剤の有効成分化合物、特に土壌処理型のものなどがある。

[0048]

動物寄生生物防除剤としては、例えば、宿主動物の体表(背、腋下、下腹部、内股部など)に寄生する外部寄生生物や、宿主動物の体内(胃、腸管、肺、心臓、肝臓、血管、皮下、リンパ組織など)に寄生する内部寄生生物の防除に有効であるが、なかでも、外部寄生生物の防除に有効である。

[0049]

外部寄生生物としては、例えば、動物寄生性のダニやノミなどが挙げられる。これらの 種類は非常に多く、全てを列記することが困難であるので、その一例を挙げる。

[0050]

動物寄生性のダニとしては、例えばオウシマダニ(Boophilus microplus)、クリイロ コイタマダニ (Rhipicephalus sanguineus) 、フタトゲチマダニ (Haemaphysalis longic ornis)、キチマダニ(Haemaphysalis flava)、ツリガネチマダニ(Haemaphysalis camp anulata)、イスカチマダニ(<u>Haemaphysalis</u> concinna)、ヤマトチマダニ(<u>Haemaphysal</u> <u>is japonica</u>)、ヒゲナガチマダニ(<u>Haemaphysalis kitaokai)、イヤスチマダニ(Haema</u> physalis ias)、ヤマトマダニ (Ixodes ovatus)、タネガタマダニ (Ixodes nipponensi s)、シュルツェマダニ(<u>Ixodes persulcatus</u>)、タカサゴキララマダニ(<u>Amblyomma tes</u> tudinarium)、オオトゲチマダニ(Haemaphysalis megaspinosa)、アミノカクマダニ(D ermacentor reticulatus)、タイワンカクマダニ (Dermacentor taiwanesis) のようなマ ダニ類;ワクモ (Dermanyssus gallinae) ; トリサシダニ (Ornithonyssus sylviarum) 、ミナミトリサシダニ(<u>Ornithonyssus</u> <u>bursa</u>)のようなトリサシダニ類;ナンヨウツツ ガムシ(Eutrombicula wichmanni)、アカツツガムシ(Leptotrombidium akamushi)、フ トゲツツガムシ(Leptotrombidium pallidum)、フジツツガムシ(Leptotrombidium fuji)、トサツツガムシ(<u>Leptotrombidium</u> tosa)、ヨーロッパアキダニ(Neotrombicula au tumna<u>lis</u>)、アメリカツツガムシ(Eut<u>rombicula</u> <u>alfreddugesi</u>)、ミヤガワタマツツガ ムシ (Helenicula miyagawai) のようなツツガムシ類;イヌツメダニ (Cheyletiella yas guri)、ウサギツメダニ(Cheyletiella parasitivorax)、ネコツメダニ(Cheyletiella blakei) のようなツメダニ類;ウサギキュウセンダニ (Psoroptes cuniculi) 、ウシシ ョクヒダニ(<u>Chorioptes bovis</u>)、イヌミミヒゼンダニ(<u>Ot</u>odectes cynotis)、ヒゼン ダニ(<u>Sarcoptes scabiei</u>)、ネコショウセンコウヒゼンダニ(Notoedres cati)のよう なヒゼンダニ類;イヌニキビダニ (Demodex canis) のようなニキビダニ類などが挙げら れる。なかでも、本発明化合物を含有する動物寄生生物防除剤は、マダニ類などの防除に 特に有効である。

[0051]

ノミとしては、例えば、ノミ目(Siphonaptera)に属する外部寄生性無翅昆虫、より具体的には、ヒトノミ科(Pulicidae)、ナガノミ科(Ceratephyllus)などに属するノミ類が挙げられる。ヒトノミ科に属するノミ類としては、例えば、イヌノミ(Ctenocephalide s canis)、ネコノミ(Ctenocephalides felis)、ヒトノミ(Pulex irritans)、ニワトリフトノミ(Echidnophaga gallinacea)、ケオプスネズミノミ(Xenopsylla cheopis)、メクラネズミノミ(Leptopsylla segnis)、ヨーロッパネズミノミ(Nosopsyllus fasciatus)、ヤマトネズミノミ(Monopsyllus anisus)などが挙げられる。なかでも、本発明化合物を含有する動物寄生生物防除剤は、ヒトノミ科に属するノミ類、特にイヌノミ、ネコノミなどの防除に有効である。

[0052]

その他の外部寄生生物としては、例えば、ウシジラミ、ウマジラミ、ヒツジジラミ、ウシホソジラミ、アタマジラミのようなシラミ類;イヌハジラミのようなハジラミ類;ウシアブ、ウアイヌカカ、ツメトゲブユのような吸血性双翅目害虫などが挙げられる。また、内部寄生生物としては、例えば、肺虫、ベンチュウ、結節状ウオーム、胃内寄生虫、回虫、糸状虫類のような線虫類;マンソン裂頭条虫、広節裂頭条虫、瓜実条虫、多頭条虫、単包条虫、多包条虫のような条虫類;日本住血吸虫、肝蛭のような吸虫類;コクシジウム、マラリア原虫、腸内肉胞子虫、トキソプラズマ、クリプトスポリジウムのような原生動物などが挙げられる。

[0053]

宿主動物としては、種々の愛玩動物、家畜、家禽などが挙げられ、より具体的には、イヌ、ネコ、マウス、ラット、ハムスター、モルモット、リス、ウサギ、フェレット、鳥(例えば、ハト、オウム、九官鳥、文鳥、インコ、ジュウシマツ、カナリアなど)、ウシ、ウマ、ブタ、ヒツジ、アヒル、ニワトリなどが挙げられる。なかでも、本発明化合物を含有する動物寄生生物防除剤は、愛玩動物又は家畜に寄生する有害生物、特に外部寄生生物の防除に有効である。愛玩動物又は家畜の中ではイヌ、ネコ、ウシ又はウマに特に有効である。

[0054]

本発明化合物を動物寄生生物防除剤として使用する際、そのまま使用してもよく、また 、適当な補助剤と共に粉剤、粒剤、錠剤、散剤、カプセル剤、液状剤、乳剤、水生懸濁剤 、油性懸濁剤などの種々の形態に製剤して使用することもできる。尚、前記製剤形態以外 にも、本発明の目的に適合するかぎり、通常の当該分野で用いられているあらゆる製剤形 態にすることができる。製剤に使用する補助剤としては、前記した農園芸用有害生物防除 剤の製剤用補助剤として例示した陰イオン系の界面活性剤や非イオン系の界面活性剤:セ チルトリメチルアンモニウムブロミドのような陽イオン系の界面活性剤;水、アセトン、 アセトニトリル、モノメチルアセトアミド、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミ ド、2-ピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン、ケロシン、トリアセチン、メタノール、 エタノール、イソプロパノール、ベンジルアルコール、エチレングリコール、プロピレン グリコール、ポリエチレングリコール、液体ポリオキシエチレングリコール、ブチルジグ リコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエー テル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールノルマルブチル エーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールノルマ ルブチルエーテルのような溶剤;ブチルヒドロキシアニソール、ブチルヒドロキシトルエ ン、アスコルビン酸、メタ亜硫酸水素ナトリウム、プロピル没食子酸塩、チオ硫酸ナトリ ウムのような酸化防止剤;ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、酢酸ビニルと ビニルピロリドンのコポリマーのような被膜形成剤;前記した農園芸用有害生物防除剤の 製剤用補助剤として例示した植物油や鉱物油;乳糖、蔗糖、ブドウ糖、澱粉、麦粉、コー ン粉、大豆油粕、脱脂米糠、炭酸カルシウム、その他市販の飼料原料のような担体などが 挙げられる。これら補助剤の各成分は、本発明の目的から逸脱しないかぎり、1種又は2 種以上を適宜選択して使用することができる。また、前記した補助剤以外にも当該分野で 知られたものの中から適宜選択して使用することもでき、更には、前記した農園芸分野で 使用される各種補助剤などから適宜選択して使用することもできる。

[0055]

本発明化合物と各種補助剤との配合割合は、通常0.1:99.9~90:10程度である。これら製剤の実際の使用に際しては、そのまま使用するか、または水等の希釈剤で所定濃度に希釈し、必要に応じて各種展着剤(界面活性剤、植物油、鉱物油など)を添加して使用することができる。

[0056]

宿主動物への本発明化合物の投与は、経口又は非経口によって行われる。経口投与法としては、例えば本発明化合物を含有する錠剤、液状剤、カプセル剤、ウエハース、ビスケット、ミンチ肉、その他の飼料等を投与する方法などが挙げられる。非経口投与方法としては、例えば本発明化合物を適当な製剤に調製した上で、静注投与、筋肉内投与、皮内投与、皮下投与等により体内に取り込ませる方法;スポットオン(spot-on)処理、ポワオン(pour-on)処理、スプレー処理等により体表面に投与する方法;宿主動物の皮下に本発明化合物を含有する樹脂片等を埋め込む方法などが挙げられる。

[0057]

宿主動物への本発明化合物の投与量は、投与方法、投与目的、疾病症状等によって異なるが、通常、宿主動物の体重1 Kgに対して0.01mg~100g、望ましくは0.1mg~10gの割合で投与するのが適当である。

[0058]

本発明には、前記したような投与方法又は投与量による有害生物の防除方法、特に外部 寄生生物又は内部寄生生物の防除方法も含まれる。

[0059]

本発明化合物を動物寄生生物防除剤として使用する際、補助剤と共に各種ビタミン類、ミネラル類、アミノ酸類、栄養剤、酵素製剤、解熱剤、鎮静剤、消炎剤、殺菌剤、着色剤、芳香剤、保存剤等と混用又は併用することができる。また、必要に応じて他の各種動物薬や農薬、例えば駆虫剤、抗コクシジウム剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺ノミ剤、殺線虫剤、殺菌剤、抗菌剤などと混用又は併用することができ、この場合に一層優れた効果を示すこともある。本発明には、前記したような各種成分を混用又は併用した混合有害生物防除組成物が含まれ、また、それを使用した有害生物の防除方法、特に外部寄生生物又は内部寄生生物の防除方法も含まれる。

【実施例】

[0060]

次に本発明の実施例を記載するが、本発明はこれらに限定されるものではない。まず本 発明化合物の合成例を記載する。

合成例1

N-[6-[[(シクロプロピルメチル)アミノ]カルボニル]-2-メチルフェニル]-1-(3-クロロ-2-ピリジル)-3-(トリフルオロメチル)-1H-ピラゾール-5-カルボキサミド(後記化合物No.2)の合成

[0061]

合成例 2

N-[4-クロロ-6-[[(2-ジフルオロメチルチオエチル)アミノ]カルボニル]-2-メチルフェニル]-1-(3-クロロ-2-ピリジル)-3-(トリフルオロメチル)-1H-ピラゾール-5-カルボキサミド(後記化合物No.3)の合成

(1) 水素化アルミニウムリチウム 1.08g 及びジエチルエーテル 100m 10 懸濁液に、ジフルオロメチルチオ酢酸エチルエステル 8g を室温で徐々に滴下した後、還流下に 4時間反応させた。反応終了後、反応混合物を氷冷し、水 2.16m 1 及び 10% 水酸化ナトリウム水溶液 1.72m 1 を滴下した後、室温で一晩攪拌した。不溶物を濾別し、溶媒を減圧下に留去して、油状の 2-(ジフルオロメチルチオ) エタノール 4.2g を得た。

[0062]

(2)前工程で得た2-(ジフルオロメチルチオ)エタノール3.76g、フタルイミド4.32g、トリフェニルホスフィン7.69g及びテトラヒドロフラン100m1の混合溶液に、室温でジイソプロピルアゾジカルボキシレート5.93gを徐々に滴下した後、室温で一晩反応させた。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、残渣にジエチルエーテル200m1を加え、不溶物を濾別した。その後溶媒を減圧下に留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液:n- へキサン/酢酸エチル=4/1)で精製して、N-2-(ジフルオロメチルチオ)エチルフタルイミド5.12gを得た。このもののNMRスペクトルデータは以下の通りである。

 $^{1}H-NMR$ δppm (solvent: CDCl₃/300MHz)

3.13(t, 2H), 3.98(t, 1H), 6.84(t, 2H), 7.75(m, 2H), 7.85(m, 2H)

[0063]

[0064]

(4)前工程で得た2-(ジフルオロメチルチオ)エチルアミン塩酸塩1.11g及びテトラヒドロフラン50mlの混合溶液に、氷冷下でトリエチルアミン1.37gを徐々に滴下した後、室温で30分間攪拌した。次に6-クロロ-2-[1-(3-クロロ-2-ピリジル)-3-(トリフルオロメチル)-1 H-ピラゾール-5-イル]-8-メチル-4 H-3, 1-ベンゾオキサジン-4-オン1g及びテトラヒドロフラン10mlの混合溶液を徐々に滴下した。滴下終了後、混合溶液を還流下に5時間反応させた。反応終了後、溶媒を減圧下に留去し、残渣に酢酸エチルと水とを加えて抽出した。有機層を水及び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムを加えて乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(溶離液:n-ヘキサン/酢酸エチル=1/1)で精製して、融点192.0℃の目的物0.43gを得た。

[0065]

合成例3

 $N-[2-プロモー4-クロロー6-[[\alpha-メチルー(シクロプロピルメチル)アミノ]カルボニル]-フェニル]-3-プロモー1-(3-クロロー2-ピリジル)-1H-ピラゾールー5-カルボキサミド(後記化合物No.48)の合成$

[0066]

次に、前記式(I)で表される本発明化合物の代表例を第1表に挙げる。これら化合物は前記合成例或は前記した本発明化合物の種々の製造方法に基づいて合成することができる。尚、第1表中、No.は化合物No.を示す。また、第1表中、Meはメチル基を、CPrはシクロプロピル基を各々示す。また、第1表中、2-Me-CPrとあるのは、2位にメチル基が置換したシクロプロピル基を示し、他の同様の記載もこれに準じる。

[0067]

【表1】

第1表

男 I No.	R ^{1a}	R1b	R ^{1C}	R ^{1d}	\mathbb{R}^2	R ³	A	物性 (融点℃)
1	Me	H	H	H	CF_3	Cl	CH ₂ CH(Me)SCHF ₂	216.9
2	Me	H	Н	H	CF ₃	Cl	CH ₂ -[CPr]	199.4
3	Me	H	Cl	H	CF_s	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	192.0
4	Me	Н	Cl	H	CF ₈	Cl	CH ₂ -[CPr]	216.4
5	Me	H	Cl	Н	CF ₃	Cl	CH ₂ CH(Me)SCHF ₂	188.3
6	Me	H	Cl	Н	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	210.0
7	Me	H	Cl	Н	CF_s	Cl	CH ₂ SCHF ₂	210.0
8	Me	Н	Cl	H	CF_s	Cl	CH(Me)SCHF ₂	
9	Me	Н	Cl	Н	CFs	Cl	CH ₂ C(Me) ₂ SCHF ₂	
10	Me	Н	Cl	H	CF_8	Cl	CH ₂ -[2-Me-CPr]	
11	Me	Н	Cl	Н	CF ₃	Cl	CH ₂ CH ₂ SCF ₃	
12	Me	H	Cl	Н	Cl	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	226.1
13	Me	H	Cl	H	Br	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	
14	Me	H	Br	H	CFs	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	
15	Br	H	Br	H	CF ₃	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	
16	Cl	H	Br	H	CF_3	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	
17	Br	H	F	Н	CF ₃	Cl	CH,CH,SCHF,	
18	Br	H	Cl	H	CF ₃	Cl	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	
19	Me	Н	Cl	H	CF_3	Cl	CH ₂ -[2,2-Cl ₂ -1-Me-CPr]	219.3
20	Me	Н	Cl	H	Cl	CF_3	CH ₂ CH ₂ SCHF ₂	
21	Me	Н	Cl	H	Cl	Cl	CH ₂ -[CPr]	
22	Me	Н	Cl	H	Br	Cl	CH ₂ -[CPr]	
23	Me	H	Cl	H	CF_3	Cl	CH ₂ CH(Me)SOCHF ₂	
24	Me	H	Cl	Н	CF_{s}	Cl	CH ₂ CH(Me)SO ₂ CHF ₂	
25	Me	H	Cl	H	CF_3	Cl	CH ₂ CH ₂ SOCHF.	109.7
26	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	CH ₂ CH ₂ SO ₂ CHF ₂	108.2
27	Me	H	Cl	Н	CF_3	Cl	C(Me) ₂ CH ₂ SOCHF ₂	
28	Me	H	Cl	Н	CF_3	Cl	CH(Me)CH ₂ CH ₂ SOCHF ₃	
29	Me	H	Cl	Н	CF_3	Cl	CH(Me)CH ₂ CH ₂ SO ₂ CHF ₂	
30	Me	Н	Cl	H	Cl	Cl	CH(Me)-[CPr]	186.7
31	Me	Н	Cl	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	183.6
32	Me	H	Cl	H	CF_3	Cl	CH ₂ -[1-Me-CPr]	161.2
33	Me	H	Br	H	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	163.7
34	Br	Н	Br	H	CF_3	Cl	CH(Me)-[CPr]	165.5
35	Cl	H	Br	Н	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	176.5
36	Br	H	Cl	H	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	158.2
37	Me	Н	Cl	H	CF ₃	Cl	CH(Me)CH ₂ SCH ₂ CF ₃	149-151
38	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	CH(Me)CH ₂ SOCH ₂ CF ₃	153-155
39	Me	H	Cl	H	CF ₃	Cl	CH(Me)CH ₂ SO ₂ CH ₂ CF ₃	171-173

【表2】

第1表(つづき)

No	. R ^{1a}	R16	R1C	R ^{1d}	\mathbb{R}^2	Rs	A	物性
40	Me	H	I	H	CIE	- OI		(配点℃)
41	Br	H	$\frac{1}{I}$	$\frac{11}{H}$	CF _s	Cl	CH(Me)-[CPr]	185.1
42	I	H	Br	H	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	251.5
43	Cl	H	I	$\frac{\Pi}{H}$	CF_3	Cl	CH(Me)-[CPr]	145.5
44	Me	H H	Cl	H	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	194.2
45	Cl	H	Cl	$\frac{1}{H}$	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	230.9
46	$\frac{Dr}{Br}$	H	Br	H	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	238.8
47	$\frac{D1}{C1}$	H	Cl		Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	242.1
48	Br	H	Cl	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	236.8
$\frac{10}{49}$	Br	H		H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	260.6
50	Me	H	I	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	236.9
51	Me		I -	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	186.0
$\frac{51}{52}$	Inte	H	Br	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	188.8
53		H	Cl	H	Br	C1	CH(Me)-[CPr]	251.4
$\frac{55}{54}$	Br	H	F	H	CF_3	C1	CH(Me)-[CPr]	220.1
	I	H	Cl	H	CF_s	Cl	CH(Me)-[CPr]	241.0
55	Cl	H	F	H	CF_3	Cl	CH(Me)-[CPr]	214.0
56	I	H	I	H	CF_s	Cl	CH(Me)-[CPr]	251.9
57	Br	H	F	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	219.2
58	Me	H	Cl	H	CF_s	Br	CH(Me)-[CPr]	162-164
59	Me	H	Cl	H	Cl	$\mathrm{CF}_{\mathtt{S}}$	CH(Me)-[CPr]	154-156
60	Me	H	Cl	H	Br	Br	CH(Me)-[CPr]	128-132
61	Cl	H	F	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	1 20 102
62	I	H	F	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	
63	F	H	Cl	H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	
64	F	H	Cl	H	CF_3	Cl	CH(Me)-[CPr]	
65	I	H	F	H	CF_3	Cl	CH(Me)-[CPr]	
66	F	H	Br	H	CF_s	Cl	CH(Me)-[CPr]	
67	F	H			Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	
38	F	H		H	CF ₃	CI	CH(Me)-[CPr]	
39	F	H		H	Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	
70	F	H		H	CF _s	Cl	CH(Me)-[CPr]	
71	F	H			Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	
72	Me	H	F	H	CF ₃	Cl	CH(Me)-[CPr]	
73	Me	H			Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	
74	Cl	H	Br		Br	Cl	CH(Me)-[CPr]	

[0069]

次に試験例を記載する。

試験例1 ハスモンヨトウに対する効果試験

本発明化合物の濃度が50ppmとなるよう調製した薬液に、キャベツの葉片を約10秒間浸漬し、風乾した。直径9cmのペトリ皿に湿った濾紙を敷き、その上に風乾したキャベツの葉片を置いた。そこへ、 $2\sim3$ 令のハスモンヨトウ幼虫10 頭を放ち、ふたをして25 $\mathbb C$ の照明付恒温室内に放置した。放虫後5 日目に生死を判定し、下記計算式により死虫率を求めた。前記化合物 $No.1\sim6$ 、12、19、25、26、 $30\sim58$ 及び60 について死虫率を求めたところ、全ての化合物が90 %以上の高い防除効果を示した。

死虫率(%)=(死虫数/放虫数)×100

[0070]

試験例2 フタトゲチマダニに対する薬効試験

9 c m径シャーレ内面に、本発明化合物のアセトン溶液 $1 \, \text{ml}$ (濃度: $1 \, 0 \, \mu \, \text{g/ml}$)をマイクロピペットで滴下処理した。一方、対照区として、アセトン $1 \, \text{ml}$ を同様に滴下処理した。シャーレ内面が乾燥した後、約 $1 \, 0 \, 0$ 匹の幼ダニを入れ、ポリエチレンシートで被い輪ゴムで密封した。その後観察時以外は、シャーレを $2 \, 5 \, \mathbb{C}$ 恒温、相対湿度 $1 \, 0 \, 0$ %、恒暗条件下で静置した。観察は幼ダニをシャーレに入れてから一定時間経過後毎($5 \, \text{分}$ 、 $1 \, 0 \, \text{分}$ 、 $1 \, 5 \, \text{分}$ 、 $2 \, 0 \, \text{分}$ 、 $3 \, 0 \, \text{分}$ 、 $4 \, 5 \, \text{分}$ 、 $1 \, \text{时間}$ 、 $2 \, \text{時間}$ 、 $4 \, \text{時間}$ 、 $6 \, \text{時間}$ 及び $2 \, 4 \, \text{時間}$)に行い、薬剤接触後の横転(ノックダウン)ダニ数を記録した。以上の操作を $2 \, \text{回繰り返した。}$

各観察時における横転率を下記アボットの補正式によって補正し、次いでプロビット・時間直線を引き、半数横転時間(KT50値)を求めた。前記化合物No.6は15分後、化合物No.31は10分又は15分後の補正横転率が100%であった。また、各々のKT50値は第2表の通りである。

補正横転率(%)=[(対照区の非横転率-処理区の非横転率)/対照区の非横転率]×100

[0071]

【表3】

第2表

化合物 No.	KT50 (分)			
10 10 NO.	1回目	2回目		
6	9	8		
3 1	7.5	6		

[0072]

次に製剤例を記載する。

製剤例1

(1) —— 70 FIR A. A. W.	
(1) 本発明化合物	20重量部
(2) クレー	20里里司
	72重量部
(3)リグニンスルホン酸ソーダ	• •
N L o 2 o 2 th 1 n n A A A A A A A A A A A A A A A A A	8 重量部

以上のものを均一に混合して水和剤とする。

製剤例2

(1)本発明化合物5重量部(2)タルク95重量部

以上のものを均一に混合して粉剤とする。

[0073]

製剤例3

(1) 本発明化合物	20重量部
(2) NI NI (2)	20里里印
(2) N, N' ージメチルアセトアミド	20重量部
(3) ポリオキシエチレンアルキルフェニルエー	
	アル 10重量部
(4) キシレン	50重量部
Not an about the second control of the secon	ひりままり

以上のものを均一に混合、溶解して乳剤とする。

製剤例4

(1) クレー 68重量部

(2) リグニンスルホン酸ソーダ 2 重量部

(3) ポリオキシエチレンアルキルアリールサルフェート 5 重量部 (4) 微粉シリカ 2 5 重量部

以上の各成分の混合物と、本発明化合物とを4:1の重量割合で混合し、水和剤とする。

[0074]

製剤例5

(1) 本発明化合物

50重量部

ページ: 19/E

(2)オキシレーテッドポリアルキルフェニルフォスフェートートリ	エタノールアミン
	2重量部
(3) シリコーン 0.	2 重量部
(4)水 47.	8重量部
以上のものを均一に混合、粉砕した原液に更に	
(5)ポリカルボン酸ナトリウム	5重量部
(6) 無水硫酸ナトリウム 42	8重量部
を加え均一に混合、造粒、乾燥して顆粒水和剤とする。	- III III
[0075]	
製剤例 6	
(1)本発明化合物	5 重量部
(0) #11 # + 2 - + 1 x 1 x 4 x	1重量部
(0) $= 10$ $= 1$ $= 10$ $= 10$	1重量部
(4) 粒状炭酸カルシウムq₃	0 重農部
(1)~(3)を予め均一に混合し、適量のアセトンで希釈した後、	(4) に吹付け コ
セトンを除去して粒剤とする。	(1) (2)(1)()()
製剤例 7	
(1) 本発明化合物 2	5 重量部
(2) N-メチル-2-ピロリドン 2. :	5 重量部
(3) 大豆油 9.5 (0 重量部
以上のものを均一に混合、溶解して微量散布剤(ultra low volume for	mulation)とする。
100761	maratron, c , 10 8
製剤例 8	
(1) 本発明化合物 4(0 重量部
(2) オキシレーテッドポリアルキルフェニルフォスフェートートリニ	- <u>エ</u> ュロ - エタノールアミン
5	2 重量部
(3) シリコーン	2 重量部
(4) $\forall y \forall y \forall z \forall z $	L 重量部
(5) エチレングリコール ₋	5 重量部
(6) 水 5.2.7	
以上のものを均一に混合、粉砕して水性懸濁剤とする。	<u> </u>
製剤例 9	
(1) 本発明化合物 10	重量部
(9) ジェエーン ドロー・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	重量部

以上の成分を均一に混合し、溶状剤とする。

【書類名】要約書

【要約】

【課題】長年にわたり、多数の有害生物防除剤が使用されているが、効力が不十分、有害生物が抵抗性を獲得しその使用が制限される等、種々の課題を有するものが少なくない。従って、かかる欠点の少ない有害生物防除剤の開発が望まれている。

【解決手段】アントラニルアミド系化合物につき種々検討した結果、本発明を完成した。 すなわち本発明は、式(I):

【化1】

$$\begin{array}{c|c} & & & & \\ & &$$

(式中、 R^1 はハロゲン又はアルキルであり、 R^2 及び R^3 は各々ハロゲン又は $-CF_3$ であり、AはYで置換されたアルキルであり、Yはハロアルキルチオ;ハロアルキルスルフィニル;ハロアルキルスルホニル;又はハロゲン若しくはアルキルで置換されてもよいシクロアルキルであり、mは1又は2であり、nは0又は1である)で表されるアントラニルアミド系化合物である。

【選択図】なし

特願2004-295778

ページ: 1/E

認定·付加情報

特許出願の番号

特願2004-295778

受付番号

5 0 4 0 1 7 2 2 5 0 8

書類名

特許願

担当官

第六担当上席

0095

作成日

平成16年10月12日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成16年10月 8日

特願2004-295778

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000000354]

1. 変更年月日 [変更理由]

1993年 6月21日 住所変更

住所

大阪府大阪市西区江戸堀一丁目3番15号

氏 名 石原産業株式会社